

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-292342

(43)Date of publication of application : 07.11.1995

(51)Int.Cl. C09J177/06
C08G 69/42
C09J183/10

(21)Application number : 06-090131

(71)Applicant : NIPPON DENPUN KOGYO KK
NIPPON OIL & FATS CO LTD

(22)Date of filing : 27.04.1994

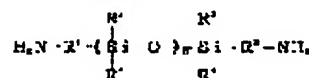
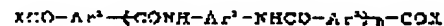
(72)Inventor : AKASHI MITSURU
SEKI KOUJI
KISHIMOTO MAMORU
NAGATA KAZUSHI
WAKI KAZUNORI
KOINUMA YASUYOSHI

(54) POLYARAMID SILOXANE BASED THERMORESISTANCE ADHESIVE

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the subject adhesive containing a specific polyaramid siloxane resin and an organic solvent, having excellent workability during application and storage stability, excellent in heat resistance, moisture resistance, etc., and exhibiting excellent adhesivity to glass, etc.

CONSTITUTION: This adhesive is produced by compounding (A) a polyaramid siloxane resin prepared by polycondensation of an aromatic amide oligomer of formula I [X is OH, Cl, etc.; Ar1 and Ar2 each is a divalent aromatic group; (m)=1-50] with a diaminosiloxane of formula II [R1 and R2 each is a 1-5C divalent aliphatic or aromatic group; R3 and R4 each is a monovalent aliphatic or aromatic group; (n)=1-100] and containing a diaminosiloxane unit in an amount of 10-50wt.% and (B) an organic solvent (preferably dimethyl sulfoxide, etc.) preferably in the ratio of 10g of the component A against 50-500ml of the component B. Further, the preparation of the oligomer of formula I is preferably carried out by using isophthalic acid as the aromatic dicarboxylic acid.



II

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

18.04.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-292342

(43) 公開日 平成7年(1995)11月7日

(51) Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 9 J 177/06	J F Y			
C 0 8 G 69/42	N S N			
C 0 9 J 183/10	J G F			

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平6-90131

(22) 出願日 平成6年(1994)4月27日

(71) 出願人 594072580

日本源粉工業株式会社

鹿児島県鹿児島市南栄3丁目20番地

(71) 出願人 000004341

日本油脂株式会社

東京都渋谷区恵比寿四丁目20番3号

(72) 発明者 明石 満

鹿児島県鹿児島市皇徳寺台2丁目14番6号

(72) 発明者 積 浩二

鹿児島県鹿児島市和田町924番地6

(72) 発明者 岸本 守

鹿児島県鹿児島市中山町3129番地53

(74) 代理人 弁理士 酒井 一 (外1名)

最終頁に続く

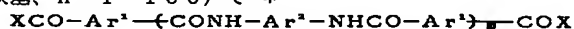
(54) 【発明の名称】 ポリアラミドシロキサン系耐熱性接着剤

(57) 【要約】

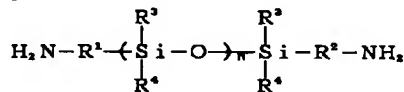
【構成】 式化1 (式中X=—OH、Cl又はBr、Ar¹及びAr²=2価の芳香族残基、m=1~50) で表わされる芳香族アミドオリゴマーと、式化2 (式中R¹及びR²=C1~5の2価の脂肪族基、芳香族基、R³及びR⁴=1価の脂肪族基、芳香族基、n=1~100) で

*表わされるジアミノシロキサンとを重縮合して得られる、ジアミノシロキサン構成単位の含有量が特定のポリアラミドシロキサン樹脂と、有機溶剤とを含有するポリアラミドシロキサン系耐熱性接着剤。

【化1】



【化2】

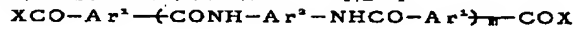


【効果】 本発明は、操作性等に優れ、ガラス、シリコ

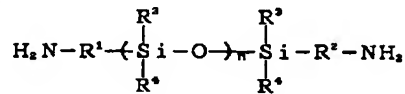
ン基板等への接着性が高く、保存安定性、耐熱性、耐湿性等に優れているため、半導体素子用の接着剤、その他ガラス用の接着剤等に最適である他、半導体の層間絶縁膜、保護膜、コーティング剤、ワニス等に利用でき、しかも安価で作業性がよく、低コスト化を図ることができる。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 下記一般式化 1（式中 X は水酸基、塩素原子又は臭素原子を示し、Ar¹ 及び Ar² は、同一若しくは異なる基であって、2 価の芳香族残基を示す。また m は 1～50 の整数を示す。）で表わされる芳香族アミドオリゴマーと、下記一般式化 2（式中 R¹ 及び R² は、同一若しくは異なる基であって、炭素数が 1～5 の 2 価の脂肪族基又は芳香族基を示し、R³ 及び R⁴ は、同一若



【化 2】



【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、耐熱性、耐湿性等に優れ、且つガラス板、シリコンウエハー等に優れた接着性を示すポリアラミドシロキサン系耐熱性接着剤に関する。

【0002】

【従来の技術】従来よりポリイミド系樹脂及びポリアミド系樹脂は、ガラス基板、シリコンウエハー、半導体等の接着剤の他、層間絶縁膜、保護膜、コーティングワニス等のエレクトロニクス分野、または一般的なコーティング剤及びワニス等に広く利用されている。前記ポリイミド樹脂は耐熱性には優れているが、溶媒に対する溶解性が低いので、接着剤として使用する場合には、テトラカルボン酸二無水物とジアミンとを、有機溶媒中にて反応させてポリアミド酸を生成させた後、ガラス等の基材に塗布し、300℃以上の高温にて加熱脱水及び閉環させる必要がある。しかもこれらの樹脂は、ガラス、シリコンウエハー等に対する接着性が不十分であるという欠点もある。

【0003】これらの欠点を解決するため、特開昭 54-146851 号公報、特開昭 58-13631 号公報、特開昭 59-4623 号公報及び特開昭 63-77936 号公報には、シロキサン結合を導入したポリイミド樹脂が、また特開平 5-98235 号公報には、ポリイミドシロキサン樹脂を使用したフィルム状接着剤が、更に特開平 4-356534 号公報には、シリコン変性ポリイミドフィルムが提案されている。しかしながら、前記シロキサン結合を導入したポリイミド樹脂を接着剤として用いる場合には、乾燥後にイミド化を行うための再加熱が必要であり、また前記フィルム状接着剤及び前記シリコン変性ポリイミドフィルムを用いる場合には、フィルム状の樹脂を加熱圧着して使用するため、操作性

*しくは異なる基であって、1 価の脂肪族基又は芳香族基を示す。また n は 1～100 の整数を示す。）で表わされるジアミノシロキサンとを重縮合して得られる、ジアミノシロキサン構成単位の含有量が 10～50 重量%のポリアラミドシロキサン樹脂と、有機溶剤とを含有することを特徴とするポリアラミドシロキサン系耐熱性接着剤。

【化 1】

10 に問題がある。

【0004】更に特開平 2-225521 号公報及び特開平 3-43418 号公報には、ポリアミドシロキサン樹脂が提案されている。しかしながら、特開平 2-225521 号公報のポリアミドシロキサン樹脂は、使用するモノマーが特殊なので、接着剤、コーティング剤として使用するにはコストがかかるという問題があり、また、特開平 3-43418 号公報のポリシロキサンポリアミド樹脂は、芳香環に官能基として水酸基を有しているので、接着剤として使用する場合、保存安定性に問題が生じるおそれがある。

【0005】

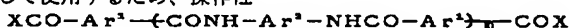
【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、使用時の操作性及び保存安定性が良好で、耐熱性、耐湿性等に優れ、且つガラス、シリコンウエハー等に優れた接着性を示すポリアラミドシロキサン系耐熱性接着剤を提供することである。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明によれば、下記一般式化 3（式中 X は水酸基、塩素原子又は臭素原子を示し、Ar¹ 及び Ar² は、同一若しくは異なる基であって、2 価の芳香族残基を示す。また m は 1～50 の整数を示す。）で表わされる芳香族アミドオリゴマー（以下アミドオリゴマー A と称す）と、下記一般式化 4（式中 R¹ 及び R² は、同一若しくは異なる基であって、炭素数が 1～5 の 2 価の脂肪族基又は芳香族基を示し、R³ 及び R⁴ は、同一若しくは異なる基であって、1 価の脂肪族基又は芳香族基を示す。また n は 1～100 の整数を示す。）で表わされるジアミノシロキサン（以下ジアミノシロキサン B と称す）とを重縮合して得られる、ジアミノシロキサン構成単位の含有量が 10～50 重量%のポリアラミドシロキサン樹脂（以下ポリアラミドシロキサン樹脂 C と称す）と、有機溶剤とを含有することを特徴とするポリアラミドシロキサン系耐熱性接着剤が提供される。

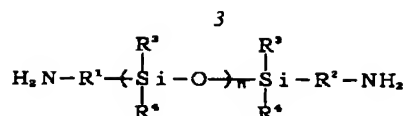
【0007】

【化 3】



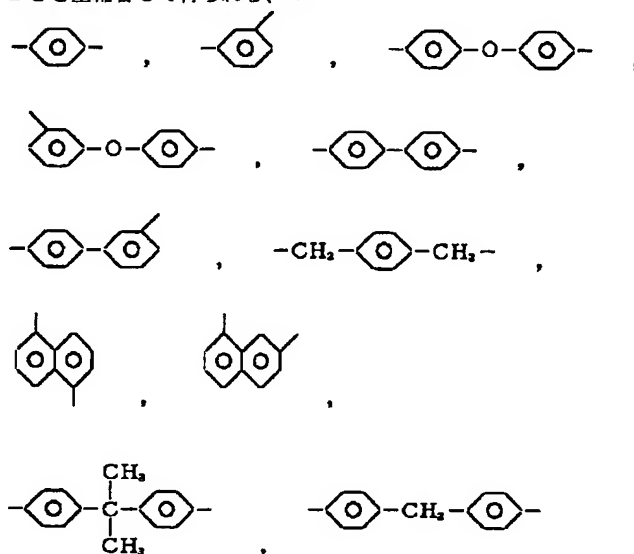
【0008】

【化 4】



【0009】以下本発明を更に詳細に説明する。本発明のポリアラミドシロキサン系耐熱性接着剤は、特定のポリアラミドシロキサン樹脂と、有機溶剤とを含有する。

【0010】本発明において、必須成分である前記特定のポリアラミドシロキサン樹脂は、前記一般式化3で表わされるアミドオリゴマーAと、前記一般式化4で表わされるジアミノシロキサンBとを重縮合して得られる、*



【0013】前記アミドオリゴマーAの具体例としては、下記構造式化6で表わされる化合物等を好ましく挙げることができる（但し、式中mは1～50の整数を示す）、使用に際しては単独若しくは混合物として用いる

*ジアミノシロキサン構成単位の含有量が特定範囲のポリアラミドシロキサン樹脂Cであり、前記一般式化3においてmが5以上、また前記一般式化4においてR¹及びR²の炭素数が6以上又はnが10以上の場合には各化合物の製造が困難である。

【0011】前記アミドオリゴマーAにおいて、Ar¹及びAr²の2価の芳香族残基としては、下記構造式化5で表わされる化合物等を挙げることができる。

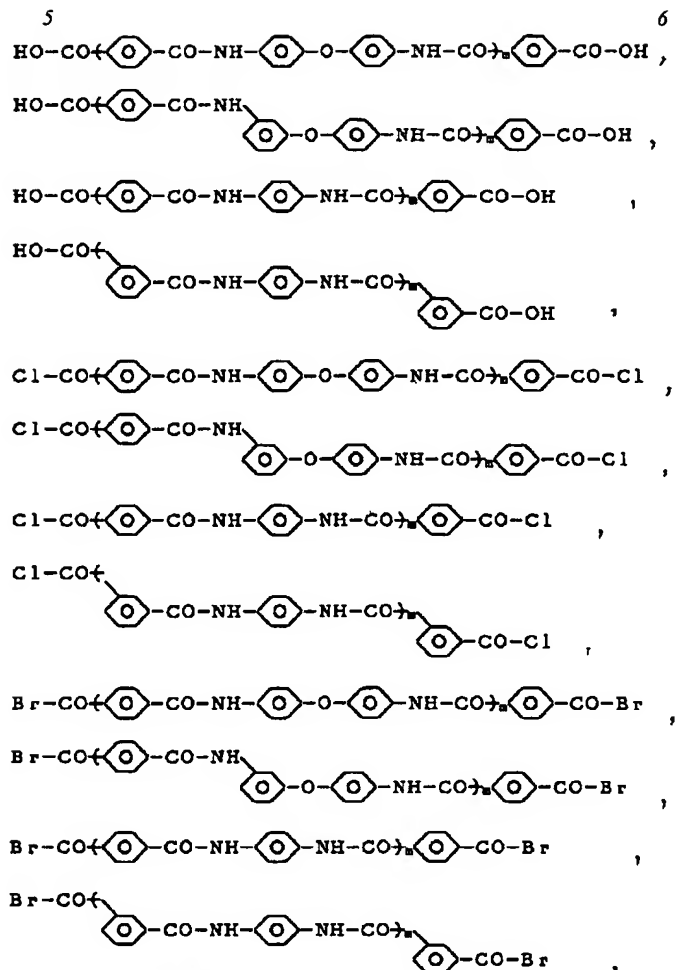
【0012】

【化5】

ことができる。

【0014】

【化6】



【0015】前記アミドオリゴマーAを調製するには、例えば、芳香族ジカルボン酸と芳香族ジアミンとを、ジシクロヘキシルカルボジイミド等の縮合剤の存在下、N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、N-メチル-2-ピロリドン、ジメチルスルホキシド等の非反応性溶媒中にて反応させる方法等により得ることができる。この際反応温度は-30~150℃が好ましく、特に-20~100℃が望ましい。また反応時間は1~48時間が望ましい。

【0016】前記芳香族ジカルボン酸としては、例えばテレフタル酸、イソフタル酸、ジフェニルエーテル-4, 4'-ジカルボン酸、ジフェニルスルホン-4, 4'-ジカルボン酸、ジフェニル-4, 4'-ジカルボン酸等を挙げることができ、特に安価に入手できる点からイソフタル酸を使用することが好ましい。

【0017】前記芳香族ジアミンとしては、例えばm-フェニレンジアミン、p-フェニレンジアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、3, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノジフェニルスルフィド、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ジアミノ-ビフェニル、3, 3'-

ジメトキシ-ベンジジン、ビス(p-β-アミノ-t-ブチルフェニル)エーテル、p-ビス(2-メチル-4-アミノベンチル)ベンゼン、1, 5-ジアミノナフタレン等を挙げることができ、使用に際しては単独若しくは混合物として用いることができる。

【0018】また前述の方法の他に前記アミドオリゴマーAを調製するには、芳香族ジカルボン酸クロリド、芳香族ジカルボン酸ブロミド等の芳香族ジカルボン酸の反応性誘導体と芳香族ジアミンとを、トリエチルアミン等の酸受容体の存在下、クロロホルム中にて反応させる方法等により得ることもできる。この際反応に発熱を伴うため、冷却しながら反応温度を零度以下に保つようにするのが好ましい。また反応時間は0.1~20時間が好ましい。

【0019】これらの反応を行うにあたり、前記芳香族ジカルボン酸又はその反応性誘導体と、前記芳香族ジアミンとの仕込みモル比は、1.01~5:1が好ましく、特に1.02~2:1が望ましい。

【0020】前記ジアミノシロキサンBにおいて、R¹及びR²の炭素数1~5の2価の脂肪族基としては、アルキレン基等を挙げることができ、2価の芳香族基としては、前述の構造式5で表わされる化合物等を挙げる

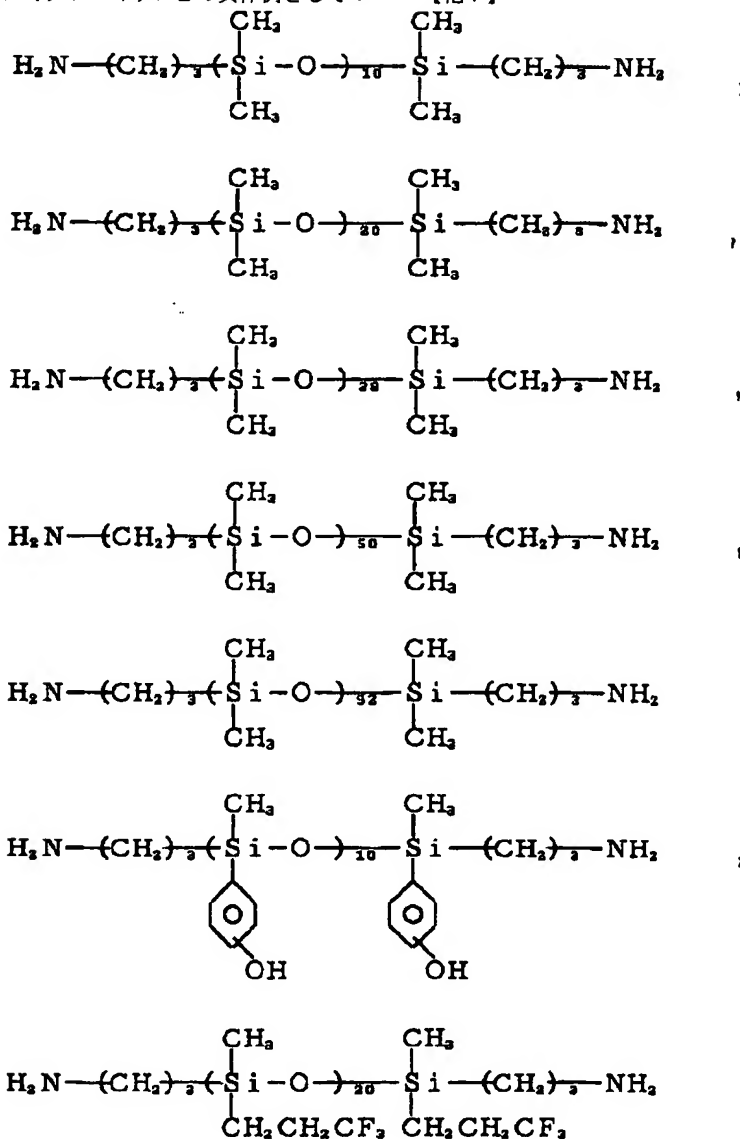
ことができる。また R^3 及び R^4 の1価の脂肪族基としては、炭素数1～5のアルキル基、アルコキシ基等を挙げることができる、1価の芳香族基としては、フェニル基等を好ましく挙げることができる。

【0021】前記ジアミノシロキサンBの具体例として*

*は、下記式化7で表わされる化合物等を挙げることができ、使用に際しては単独若しくは混合物として用いることができる。

【0022】

【化7】



【0023】前記ジアミノシロキサンBを調製するには、例えばオクタメチルサイクロテトラシロキサン等のサイクロテトラシロキサンと、1, 3-ビス(アミノプロピル)テトラメチルジシロキサン等のビスアミノジシロキサンとを、テトラメチルアンモニウムヒドロキシドを触媒として、80℃、24時間反応させる方法等により得ることができる。また商品名「X22-161-A S」、「X22-161-A」、「X22-161-B」(信越化学(株)製)等の市販品を用いることもできる。

【0024】前記ポリアラミドシロキサン樹脂Cを調製

40 するには、例えば両末端に芳香族ジカルボン酸残基を有する前記アミドオリゴマーAと、前記ジアミノシロキサンBとを、ジシクロヘキシルカルボジイミド等の縮合剤存在下、N, N-ジメチルホルムアミド等の非反応性溶媒中にて反応させる方法等により得ることができる。この際反応温度は-30～150℃、反応時間は1～48時間であるのが好ましい。また別の方法としては、例えば両末端に芳香族ジカルボン酸の反応性誘導体残基を有する前記アミドオリゴマーAと、前記ジアミノシロキサンBとを、トリエチルアミン等の酸受容体の存在下、クロロホルム中にて反応させる方法等により得ることが

きる。この際反応温度は0℃以下、反応時間は1～60時間であるのが好ましい。

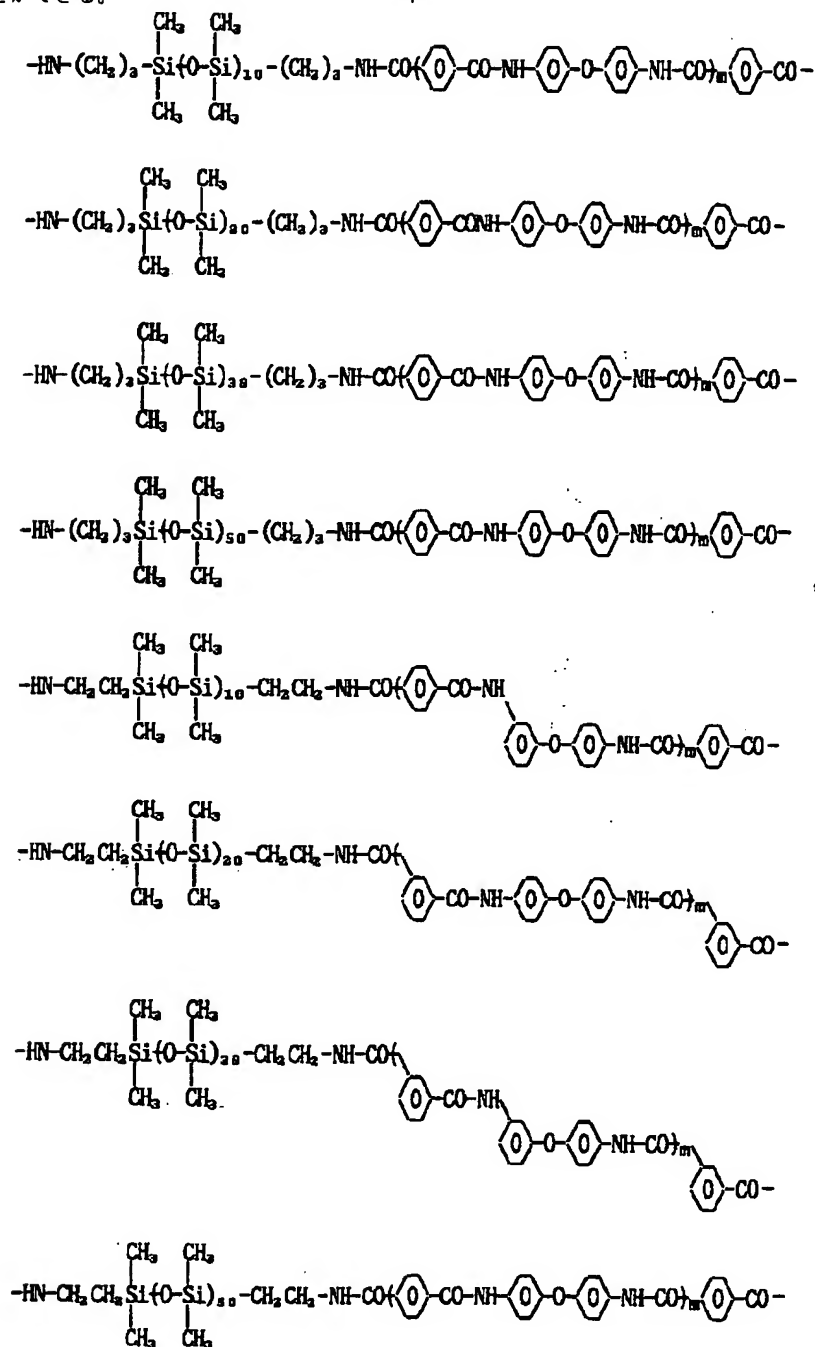
【0025】これらの重縮合反応により得られる反応混合物を、メタノール、ヘキサン等の貧溶媒に滴下又は注入して重合体を分離した後、再沈殿法等の公知の方法で精製を行うことにより、前記ポリアラミドシロキサン樹脂Cを得ることができる。

*【0026】前記得られるポリアラミドシロキサン樹脂Cの具体例としては、下記構造式化8及び化9で表わされる化合物等を好ましく挙げることができる(但し、式中mは1～50の整数を示す)。

【0027】

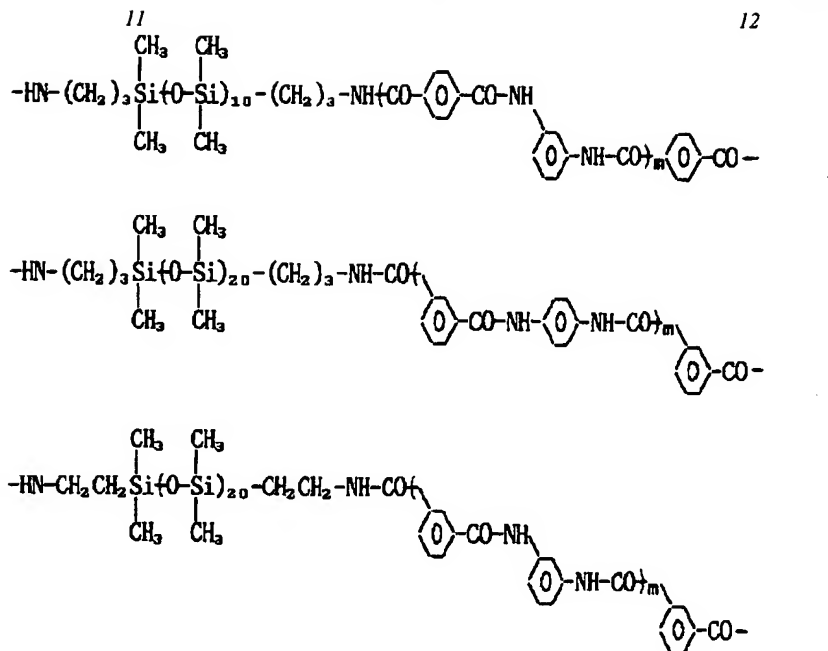
【化8】

*



【0028】

【化9】



【0029】前記ポリアラミドシロキサン樹脂Cの固有粘度 (η_{inh}) は、0.2 dl/g 以上であるのが好ましく、特に0.4 dl/g 以上が望ましい。前記固有粘度が0.2 dl/g 未満の場合、重合度が低く、接着剤としての機械的強度が不十分なので好ましくない。尚、前記固有粘度は、N, N-ジメチルアセトアミド100 ml 中に、前記ポリアラミドシロキサン樹脂Cを溶解し、30℃にて測定した値である。

【0030】前記ポリアラミドシロキサン樹脂Cは、前記アミドオリゴマーAと前記ジアミノシロキサンBとを重縮合して得られる、ジアミノシロキサン構成単位の含有量が10~50重量%の重合体であって、ジアミノシロキサン構成単位の下限は、ガラス等への接着性を十分とするために10重量%、好ましくは15重量%であり、また上限は耐熱性の低下を防止するために50重量%、好ましくは45重量%である。

【0031】本発明において、必須成分として含有する有機溶媒としては、特に限定されるものではないが、例えばN, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、N-メチル-2-ピロリドン、ジメチルスルホキシド等を好ましく挙げることができる。使用に際しては単独若しくは混合物として用いることができる。

【0032】本発明のポリアラミドシロキサン系耐熱性接着剤において、前記ポリアラミドシロキサン樹脂Cと前記有機溶媒との配合割合は、ポリアラミドシロキサン樹脂C 10 g に対して有機溶媒20~1000 ml が好ましく、特に50~500 ml が望ましい。

【0033】本発明のポリアラミドシロキサン系耐熱性接着剤には、本発明の特性を損なわない範囲で、前記必須成分の他、各種添加剤を含有させることもできる。該

20 添加剤としては、例えば、基材に対する濡れ性を高めるための各種界面活性剤及びシランカップリング剤、また接着後の強度及び耐熱性を高めるための各種架橋剤等を挙げることができる。

【0034】本発明のポリアラミドシロキサン耐熱性接着剤を使用するには、例えば、ガラス等の基板面に塗布して被接着体を圧着させるか、基板と被接着体との間に接着剤をはさみ込んだ後、200℃以下、1時間程度、乾燥して有機溶媒を除去して硬化させる方法等があり、このような方法は、基板と被接着体とに優れた接着性を付与することができる。また乾燥硬化させた後は、200℃以上の温度でも接着面は安定した状態を保つことができる。

【0035】

【発明の効果】本発明は、芳香族アミドオリゴマーとジアミノシロキサンとを重縮合させて得られるポリアラミドシロキサン樹脂と、有機溶媒とを必須成分として含有し、使用に当っては、比較的低い温度で有機溶媒を除去できるので、操作性等に優れた接着剤として利用可能である。またガラス、シリコン基板等への接着性が高く、保存安定性、耐熱性、耐湿性等に優れているため、半導体素子用の接着剤、その他ガラス用の接着剤等に最適である。更に接着剤としてだけでなく、半導体の層間絶縁膜、保護膜、コーティング剤、ワニス等の広い分野で使用することが可能であり、しかも汎用の原料を使用するため安価であり、比較的低温且つ短時間で接着するため作業性がよく、低コスト化を図ることができる。

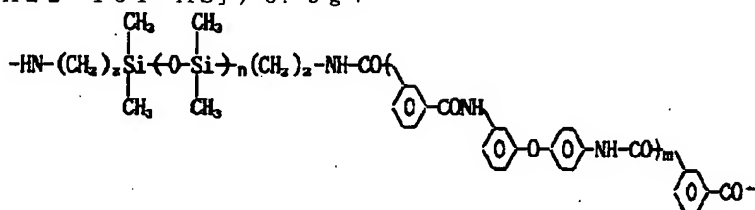
【0036】

【実施例】以下本発明を実施例及び比較例により更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

13

【0037】

【実施例1】100mlのナス型フラスコ中にて、イソフタル酸クロリド1.42g(7ミリモル)をクロロホルム10mlに溶解し、反応槽を-15℃に保ちながら、予めクロロホルム10mlに溶解しておいた、3,4'-ジアミノジフェニルエーテル1.2g(6ミリモル)、トリエチルアミン2.5ml及びトリエチルアミン塩酸塩1.28gを滴下した。次いで、攪拌しながら20分間反応させた後、クロロホルム10mlに溶解したジアミノポリジメチルシロキサン(信越化学工業(株)製、商品名「X22-161-AS」)0.9g*



【0039】得られたポリアラミドシロキサン樹脂を、N,N-ジメチルアセトアミドに溶解して10重量%溶液を調製し、接着剤とした。この接着剤をガラス基板上に塗布し、160℃、1時間乾燥後、溶媒のN,N-ジメチルアセトアミドを除去し、硬化させた。得られたポリアラミドシロキサン樹脂の膜厚は約5μmであった。得られた塗膜にカッターナイフで幅1mm、縦横それぞれ11本の切れ込みを入れ、10×10の基板目を作った。沸騰浴中に5時間浸漬前後の基板目にセロハンテープをはりつけ、剥離試験を行った結果、剥がれた基板目は0個であった。

【0040】

【実施例2】イソフタル酸クロリドの仕込み量を2.43g(12ミリモル)に、3,4'-ジアミノジフェニルエーテルの仕込み量を2.2g(11ミリモル)に、ジアミノポリジメチルシロキサン(信越化学工業(株)製、商品名「X22-161-AS」)0.9g(1ミリモル)を、ジアミノポリジメチルシロキサン(信越化学工業(株)製、商品名「X22-161-B」)3.0g(1ミリモル)に代えた以外は、実施例1と同様に行いポリアラミドシロキサン樹脂を得た(但し、mは11、nは39を示す)。収量、収率、固有粘度(η_{inh})及びシロキサン含有率を表1に示す。次いで実施例1と同様に接着剤を調製し、剥離試験を行った。結果を表1に示す。

【0041】

【実施例3】イソフタル酸クロリド仕込み量を2.03g(10ミリモル)に、ジアミノポリジメチルシロキサン(信越化学工業(株)製、商品名「X22-161-AS」)0.9g(1ミリモル)を、ジアミノポリジメチルシロキサン(信越化学工業(株)製、商品名「X22-161-A」)1.68g(1ミリモル)に代えた

14

* (1ミリモル) 及びトリエチルアミン0.5mlを滴下し、-15℃で1時間、更に室温で48時間反応させた。得られた反応生成物をメタノール中に滴下し、析出物を濾別乾燥した後、n-ヘキサンで洗浄、乾燥して、下記構造化10で表わされるポリアラミドシロキサンブロック共重合体を得た(但し、式中mは6、nは10を示す)。収量、収率、固有粘度(η_{inh})及びシロキサン含有率を表1に示す。

【0038】

【化10】

以外は、実施例1と同様に行いポリアラミドシロキサン樹脂を得た(但し、mは9、nは20を示す)。収量、収率、固有粘度(η_{inh})及びシロキサン含有率を表1に示す。次いで実施例1と同様に接着剤を調製し、剥離試験を行った。結果を表1に示す。

【0042】

【実施例4】イソフタル酸クロリド1.42g(7ミリモル)を、テレフタル酸クロリド2.43g(12ミリモル)に、3,4'-ジアミノジフェニルエーテル1.2g(6ミリモル)を2.2g(11ミリモル)に、ジアミノポリジメチルシロキサン(信越化学工業(株)製、商品名「X22-161-AS」)0.9g(1ミリモル)を、ジアミノポリジメチルシロキサン(信越化学工業(株)製、商品名「X22-161-A」)1.68g(1ミリモル)に代えた以外は、実施例1と同様に行いポリアラミドシロキサン樹脂を得た(但し、式中mは11、nは20を示す)。収量、収率、固有粘度(η_{inh})及びシロキサン含有率を表1に示す。次いで実施例1と同様に接着剤を調製し、剥離試験を行った。結果を表1に示す。

【0043】

【実施例5】イソフタル酸クロリドの仕込み量を2.03g(10ミリモル)に、3,4'-ジアミノジフェニルエーテル1.2g(6ミリモル)を、4,4'-ジアミノジフェニルエーテル1.80g(9ミリモル)に、ジアミノポリジメチルシロキサン(信越化学工業(株)製、商品名「X22-161-AS」)0.9g(1ミリモル)を、ジアミノポリジメチルシロキサン(信越化学工業(株)製、商品名「X22-161-A」)1.68g(1ミリモル)に代えた以外は、実施例1と同様に行いポリアラミドシロキサン樹脂を得た(但し、mは9、nは20を示す)。収量、収率、固有粘度(η_{inh})

h) 及びシロキサン含有率を表1に示す。次いで実施例1と同様に接着剤を調製し、剥離試験を行った。結果を表1に示す。

【0044】

【比較例1】4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル10ミリモルを、N, N-ジメチルアセトアミド20mlに溶解し、ピロメリット酸二無水物10ミリモルを添加した後、室温で10時間反応させた。得られたポリアミド酸をガラス基板に塗布し、300℃、1時間、加熱脱水した後、閉環させてポリイミド樹脂を得た。得られたポリイミド樹脂面に、カッターナイフで実施例1と同様の切り込みを入れ、剥離試験を行った。結果を表1に示す。

【0045】

		収 量	収 率	固有粘度	シロキサン	基盤目試験で剥離した枚数	
		(g)	(%)	(dl/g) *	含量 (%)	沸騰水前	沸騰水後
実 施 例	1	2.8	87.4	0.34	30	0/100	0/100
	2	5.4	70.1	0.36	45	0/100	0/100
	3	3.8	66.5	0.57	35	0/100	0/100
	4	3.6	52.5	0.49	29	0/100	0/100
	5	3.5	61.3	0.51	29	0/100	0/100
例 比 較 例	1	—	—	—	—	80/100	95/100
	2	—	—	—	8	40/100	50/100

*ジメチルアセトアミド中、30℃

【比較例2】イソフタル酸クロリドの仕込み量を1.89g (9ミリモル) に、3, 4'-ジアミノジフェニルエーテルの仕込み量を1.6g (8ミリモル) に、ジアミノポリジメチルシロキサン (信越化学工業 (株) 製、商品名「X22-161-AS」) 0.9g (1ミリモル) を、1, 3-ビス (3-アミノプロピル) テトラメチルジシロキサン (チッソ (株) 製) 0.25g (1ミリモル) に代えた以外は、実施例1と同様に行いポリアラミドシロキサン樹脂を得た (但し、mは8、nは1を示す)。収量、収率、固有粘度 (η_{inh}) 及びシロキサン含有率を表1に示す。次いで実施例1と同様に接着剤を調製し、剥離試験を行った。結果を表1に示す。

【0046】

【表1】

フロントページの続き

(72)発明者 永田 一志
鹿児島県鹿児島市中山町3129番地53

(72)発明者 脇 一徳
茨城県つくば市春日2-20-3
(72)発明者 鯉沼 康美
茨城県つくば市東新井32-16